

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003 年 11 月 20 日 (20.11.2003)

PCT

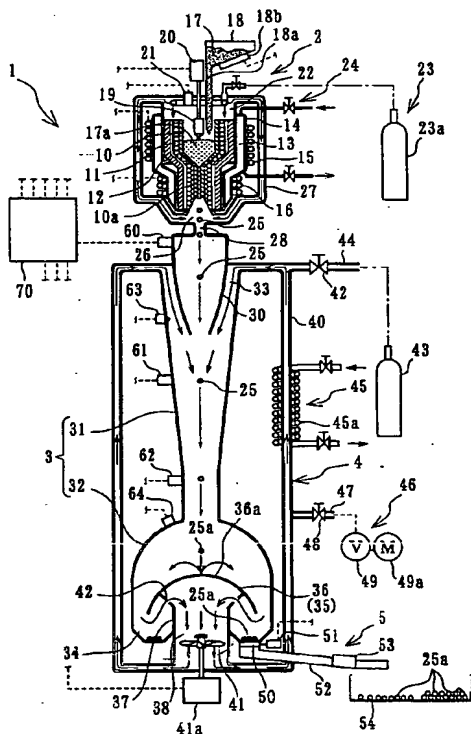
(10) 国際公開番号  
WO 03/095719 A1

- (51) 国際特許分類: C30B 30/08 (74) 代理人: 岡村 俊雄 (OKAMURA, Toshio); 〒530-0047 大阪府 大阪市北区 西天満 4 丁目 5 番 5 号 岡村特許事務所 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/04620
- (22) 国際出願日: 2002 年 5 月 13 日 (13.05.2002) (81) 指定国 (国内): AU, CA, CN, JP, KR, US.
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- (26) 国際公開の言語: 日本語 規則 4.17 に規定する申立て:  
— US のみ のための発明者である旨の申立て (規則 4.17(iv))
- (71) 出願人 および  
(72) 発明者: 中田 仗祐 (NAKATA, Josuke) [JP/JP]; 〒610-0102 京都府 城陽市 久世上大谷 1 1 2 番地の 1 7 添付公開書類:  
国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: DROP TUBE TYPE GRANULAR CRYSTAL PRODUCING DEVICE

(54) 発明の名称: 落下管型粒状結晶製造装置



(57) Abstract: A drop tube type granular crystal producing device (1) for manufacturing generally spherical crystal bodies by solidifying the granular molten liquid of inorganic material while allowing the liquid to free-fall in a drop tube, comprising a molten liquid forming device (2), a drop tube (3), a gas flow forming mechanism (4) for forming the gas flow of cooling gas inside the drop tube (3), and a recovery mechanism (5) for recovering the crystal bodies (25a) from the lower end part of the drop tube (3), the drop tube (3) further comprising an inlet tube (30), a cooling tube (31), and a solidifying tube (32), wherein the cooling tube (31) is formed so that a cross sectional area is reduced toward a bottom side to make generally equal the flow velocity of the cooling gas to the free-fall speed of the granular molten liquid and the solidifying tube (32) is connected to the bottom end of the cooling tube (31) and the cross sectional area thereof is increased discontinuously from the bottom end of the cooling tube (31), whereby, since the cooling gas is decelerated suddenly near the upper end of the solidifying tube (32) to increase a gas pressure, crystal nuclei are generated in the molten liquid in overcooled state, and the liquid is crystallized at a stroke.

[続葉有]

WO 03/095719 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

---

(57) 要約:

落下管型粒状結晶体製造装置は、無機材料の粒状の融液を落下管内を自由落下させながら凝固させてほぼ球状の結晶体を作る装置である。この結晶体製造装置（１）は、融液形成装置（２）と、落下管（３）と、落下管（３）の内部に冷却用ガスのガス流を形成するガス流形成機構（４）と、落下管（３）の下端部から結晶体（２５a）を回収する回収機構（５）などを有する。落下管（３）は、導入管（３０）と冷却用管（３１）と凝固用管（３２）からなり、冷却用（３１）は、冷却用ガスの流速が粒状の融液の自由落下速度とほぼ等しくなるように下方ほど断面積が小さくなるように構成され、凝固用管（３２）は、冷却用管（３１）の下端に接続され且つこの冷却用管（３１）の下端から不連続的に断面積が拡大している。冷却用ガスが凝固用管（３２）の上端付近で急減速されてガス圧が増大するため、過冷却状態の融液に結晶核が生成し、一気に結晶化する。

## 明 細 書

## 落下管型粒状結晶製造装置

## 05 技術分野

この発明は、無機材料の粒状の融液を落下管内を自由落下させながら凝固させてほぼ球状の結晶体を作る落下管型粒状結晶体製造装置に関し、特に落下中の融液を冷却する冷却用ガスを融液の落下方向と同方向へほぼ同速で流すように構成したものに関する。

10

## 背景技術

米国特許第4,322,379号公報には、石英製の落下チューブの上端部の内部で半導体のシリコンを加熱して融液にし、この融液にヘリウムガスのガス圧を作用させて、粒状の融液を落下チューブ内を自由落下させ、その自由落中に凝固させて

15 、ほぼ一定サイズの涙滴形結晶を製造する技術が記載されている。しかし、落下チューブ内のガスの落下抵抗を受けるため十分な微小重力状態にならない。

本願の発明者は、米国特許第6,204,545号公報に示すように、粒状の半導体単結晶を製造可能な落下チューブ型球状結晶製造装置を開示した。この球状結晶製造装置においては、約1.4mの長さの落下チューブの上端部分の内部で半導体の粒

20 を浮遊状態のまま融液にし、この融液を真空にした落下チューブ内を自由落下させ、落下中の微小重力状態のまま放射冷却により凝固させ、球状の半導体単結晶にしている。この球状結晶製造装置の落下チューブは、その全長にわたって同径に構成され、冷却用ガスを用いて融液を冷却するようには構成されていない。

粒状の融液を放射冷却により冷却するだけであるので、冷却時間が長くなり、

25 高さの大きな落下チューブが必要となるため、設備費用が高価になる。しかも、融液を全表面にわたって均一に冷却することが難しい。シリコン等の融液の場合、融液は凝固時に膨張する性質があるため、融液の全表面の冷却が不均一になると、凝固した球状結晶の形状が乱れ易くなる。

米国特許第6,106,614号公報には、ドロップタワー式球状結晶製造装置が提案されている。この球状結晶製造装置においては、ドロップタワーの上端側に石英製のルツボ2設け、外部からルツボに供給する粉状の半導体（例えば、半導体シリコン）を供給しつつ、ルツボ内で半導体を融解させ、ルツボ内の融液に振動付  
05 加機構により振動を付加することにより、ルツボの下端のノズルから、粒状の融液をドロップタワー内を落下させる。ドロップタワーの中段部の核発生ゾーンには、下方から上方へ向かう冷却用の不活性ガスの流れを発生させる冷却用ガス流形成手段と、落下する粒状の融液に種結晶を発生させる種結晶発生手段とが設け  
10 用ガスで過冷却状態に冷却され、種結晶発生手段により過冷却状態の粒状の融液に刺激を付加することで種結晶を発生させると、粒状の融液が凝固して球状結晶となる。ドロップタワーの下段部には、球状結晶の運動量を消失させる為の運動量消失ゾーンが設けられ、この運動量消失ゾーンには、球状結晶の運動方向を鉛直方向から水平方向に変化する湾曲通路と、下方から上方向きの不活性ガスの流  
15 れを発生させる減速用ガス流形成手段が設けられている。

しかし、この公報の球状結晶製造装置では、核発生ゾーン内で落下中の粒状の融液に落下方向とは逆向きの冷却用ガスの流れが作用するため、自由落下とは異なる落下状態となって、落下中の粒状の融液に外力が作用するため、融液内の構造が変動しやすく、凝固した球状結晶の形状が乱れ易く、必ずしも単結晶が得ら  
20 れる訳ではない。

本発明の目的は、冷却用ガスにより粒状の融液を冷却しながらも、自由落下による微小重力状態を維持できる落下管型粒状結晶製造装置を提供することである。本発明の別の目的は、冷却用ガスにより過冷却状態の融液に衝撃を付与して種結晶を生成可能にした落下管型粒状結晶製造装置を提供することである。

25 本発明の他の目的は、冷却用ガスによる冷却を介して落下管の高さが短縮可能な落下管型粒状結晶製造装置を提供することである。

本発明の他の目的は、冷却用ガスを循環させてガスの消費量を少なくすると共にガス圧を制御可能なようにして安定化させる落下管型粒状結晶製造装置を提

供することである。

#### 発明の開示

本発明に係る落下管型粒状結晶体製造装置は、無機材料の粒状の融液を落下管  
05 内を自由落下させながら凝固させてほぼ球状の結晶体を作る落下管型粒状結晶体  
製造装置において、前記落下管の内部に上方から下方へ向う冷却用ガスの流れを  
形成するガス流形成手段を設け、前記落下管は、冷却用ガスの流速が前記粒状の  
融液の落下速度とほぼ等しくなるように下方ほど断面積が小さくなる冷却用管と  
、この冷却用管の下端に接続され且つこの冷却用管の下端から不連続的に断面積  
10 が拡大した凝固用管とを有することを特徴とするものである。

ガス流形成手段により、落下管の内部に上方から下方へ向う冷却用ガスの流れ  
が形成される。前記落下管のうちの冷却用管は、冷却用ガスの流速が粒状の融液  
の自由落下速度とほぼ等しくなるように下方ほど断面積が小さくなっているため  
、冷却用管の内部では、冷却用ガスの流速が粒状の融液の落下速度とほぼ等しく  
15 なる。そのため、粒状の融液は冷却用管の内部を落下中には、自由落下による微小  
重力状態を維持しながら、冷却用ガスで冷却されて過冷却状態になる。

落下管のうちの凝固用管は、前記の冷却用管の下端に接続され且つこの冷却用  
管の下端から不連続的に断面積が拡大している。そのため、冷却用ガスが冷却用  
管から凝固用管に入ると、その流速が不連続的に低速になり、冷却用ガスのガス  
20 圧は不連続的に増大する。そのため、微小重力状態で過冷却状態の融液が、凝固  
用管の内部へ突入した瞬間に融液に衝撃力が作用し、結晶核が発生し、この結晶  
核を起点として球状の融液は瞬時に単結晶化してほぼ球状の結晶体となる。

このように、冷却用ガスにより粒状の融液を冷却し、ガス抵抗の少ない自由落  
下状態を維持するためほぼ球状の単結晶の結晶体を製造することができる。また  
25 、過冷却状態にした粒状の融液に冷却用ガスにより衝撃を付与して結晶核を生成  
させ、一気に結晶を生起させて結晶体を製造することができる。しかも、冷却用  
ガスによる冷却を効果的に行うため、冷却時間が短縮され、落下管の高さを大幅  
に短縮することができ、設備費を節減することができる。

ここで、本発明に次のような種々の構成を適用してもよい。

- (a) 前記ガス流形成手段は、落下管に並列接続された外部通路と、ガス循環用ファンとを備えている。
- (b) 前記落下管の上端部に、前記外部通路に接続される環状のガス導入部を設ける。
- (c) 記凝固用管の内部に、冷却用ガスの流れを急減速させる為の減速機構を設ける。
- (d) 前記減速機構は、冷却用管内の冷却用ガスのガス流に直交状に対向する対向部を含む部分球面状の減速部材を有する。
- 10 (e) 前記半導体の粒状の融液は、冷却用管内を落下中に過冷却状態となり、凝固用管の内部で急減速される際の衝撃により急速に凝固する。
- (f) 前記ガス流形成手段に、冷却用ガスを冷却する冷却装置を設けた。
- (g) 前記無機材料が半導体である。その前記半導体がシリコンである。
- (h) 前記冷却用ガスは、ヘリウムガスまたはアルゴンガスである q
- 15 (i) 前記ガス流形成手段は、前記落下管の内部の冷却用ガスのガス圧と温度を調節する圧力温度調節手段を有する q
- (j) 前記落下管の上端に接続された融液形成装置であって、粒状の融液を作って落下管内へ滴下する融液形成装置を設ける。

## 20 図面の簡単な説明

図 1 は本発明の実施の形態に係る落下管型粒状結晶体製造装置の断面図であり、図 2 は変更例の落下管の断面形状を示す説明図である。

発明を実施するための最良の形態

- 25 以下、本発明を実施するための最良の形態について図面に基づいて説明する。

この落下管型粒状結晶体製造装置は、無機材料の原料をルツボ内で熔融し、ノズルから粒状の融液を滴下し、その粒状の融液を落下管内を自由落下させながら凝固させてほぼ球状の無機材料の単結晶からなる結晶体を連続的に生産する装置

である。ほぼ球状の結晶体は、直径約600 ～1500  $\mu\text{m}$ の大きさのものである。

本実施形態においては、無機材料として半導体を採用し、半導体としてp形又はn形のシリコンを採用し、シリコンの単結晶のほぼ球状の結晶体を製造する落下管型粒状結晶体製造装置1を例にして説明する。

05 図1に示すように、この落下管型粒状結晶体製造装置1は、シリコンを溶融させ且つその融液を定量ずつ粒状の融液にして滴下する融液形成装置2と、落下管3（落下チューブ）と、落下管3の内部に上方から下方へ向う冷却用ガスの流れを形成するガス流形成機構4と、落下管3の下端部に設けられた回収機構5などを備えている。

10 最初に、融液形成装置2について説明する。

この融液形成装置2は、石英製のルツボ10、このルツボ10の下端部から下方へ一体的に延びるノズル10a、ルツボ10とノズル10aの外周を覆うカーボン発熱体11、カーボン発熱体11の外周を覆う熱シールド板12、環状の冷却水通路13を形成する石英ガラス製の環状の通路形成体14、通路形成体14  
15 の外側においてルツボ10の外周側に配設された第1高周波加熱コイル15、通路形成体14の外側においてノズル10aの外周側に配設された第2高周波加熱コイル16、ルツボ10にシリコンの原料17を供給する原料供給ホッパー18および原料供給管18a、ルツボ10内の溶融状態のシリコンに上下振動を付加する上下振動子19、ルツボ10内の溶融状態のシリコン17aの温度を測定する  
20 赤外線温度センサ21、ヘリウムガスまたはアルゴンガス等の不活性ガスをチャンバー22内へ供給するガス供給装置23、冷却水通路13に冷却水を供給する冷却水供給系24などで構成されている。

原料供給ホッパー18には、粉状、粒状、又はフレーク状の半導体シリコンの原料17が収容され、加振機18bにより振動を付加して原料17を供給管18  
25 aからルツボ10へ小量ずつ所定の供給速度にて供給する。供給管18aにはチャンバー22内の不活性ガスを原料供給ホッパー18内へ導くガス通路（図示略）が設けられている。

ルツボ10は気密構造のチャンバー22内に配置され、シリコンの原料17や

融液 17 a に空気中の酸素が混入しないようにチャンバー 22 内には、ガス供給装置 23 から供給される不活性ガスが充填されている。カーボン発熱体 11 には、第 1、第 2 高周波加熱コイル 15、16 で発生する高周波の変動磁界により誘導電流が発生し、この誘導電流が流れるときの抵抗熱によりカーボン発熱体 11  
05 が発熱する。シールド板 12 は耐熱性と輻射熱反射性に優れるモリブデン又はタングステンで構成されている。

ルツボ 10 内に投入されたシリコンの原料 17 は、第 1 高周波加熱コイル 15 とカーボン発熱体 11 により約 1420℃ に加熱されて融解する。熔融状態のシリコンの温度は赤外線温度センサ 21 により検出され、前記の温度範囲を維持するよ  
10 うに、第 1、第 2 高周波加熱コイル 15、16 が、制御装置 70 により制御される。上下振動子 19 は、磁歪素子又はソレノイドで振動を発生させる振動発生部 20 で駆動され、この上下振動子 19 によりルツボ 10 内の熔融状態のシリコン 17 a に所定周期の振動又は圧力を付加することで、ノズル 10 a の先端からシリコンの粒状の融液 25 を所定周期で滴下させる。上下振動子 19 の振動周期を  
15 小さくするか又は振動の振幅を小さくすれば粒状の融液 25 が小径化し、振動周期を大きくするか又は振動の振幅を大きくすれば粒状の融液が大径化するため、制御装置 70 により上下振動子 19 を制御し、上下振動の周期や振幅を調整することで、滴下させる粒状の融液 25 のサイズを調整することができる。

前記ガス供給装置 23 は、不活性ガスボンベ 23 a からチャンバー 22 へ通ず  
20 るガス供給管と、チャンバー 22 の頂部から下方へ延びて落下開始室 26 へ通ずる例えば 2 本のガス導入管 27 を有する。ノズル 10 a から落下開始室 26 内へ滴下した粒状の融液 25 は、融液形成装置 2 の出口通路である細径通路 28 を通って落下管 3 の頂部内へ自由落下する。落下開始室 26 内の不活性ガスも細径通路 28 を通って落下管 3 の頂部内へ流れる。

25 次に、落下管 3 について説明する。

落下管 3 は、例えばステンレス鋼板製のパイプ状のものであり、落下管 3 は、細径通路 28 に接続されて粒状の融液 25 が導入される上端部分の導入管 30 と、冷却用ガス（ヘリウムガスまたはアルゴンガス）の流速が粒状の融液 25 の自



由落下速度とほぼ等しくなるように下方ほど断面積が小さくなる冷却用管 3 1 と、この冷却用管 3 1 の下端に接続され且つこの冷却用管 3 1 の下端から不連続的に断面積が拡大した凝固用管 3 2 とを有する。

融液形成装置 2 で発生した粒状の融液 2 5 は、冷却用管 3 1 内を自由落下中に  
05 冷却用ガスで冷却されると共に放射冷却にて冷却されて過冷却状態となって、凝固用管 3 2 内へ落下し、冷却用管 3 1 内の冷却用ガスのガス圧に比べて高い圧力の凝固用管 3 2 内の冷却用ガスにランディングした時の衝撃により種結晶が生成し、その種結晶を起点とする瞬間的な結晶成長により粒状又は球状の単結晶からなる結晶体 2 5 a となる。

10 前記の冷却用管 3 1 は、その下端部以外の部分は、下方小径化するテーパ形に構成され、冷却用管 3 1 の下端部はほぼ一定の径に構成されている。但し、この冷却用管 3 1 の下端部も下方小径化するテーパ形に構成してもよい。

導入管 3 0 は冷却用管 3 1 と同心状に配設され、導入管 3 0 の下部約 2 / 3 部分は冷却用管 3 1 の上端部分に挿入され、導入管 3 0 の下端は冷却用管 3 1 の内  
15 部へ向けて開放されている。

冷却用管 3 1 は、高さが約 5 ～ 8 m 程度のもので、冷却用管 3 1 の上端部分の内側には、導入管 3 0 との間に冷却用ガスを導入する環状のガス導入部 3 3 が形成されている。凝固用管 3 2 の上端が冷却用管 3 1 の下端に連通接続され、凝固用管 3 2 の上半部は冷却用管 3 1 の下端部の直径の約 4 倍の直径の半球状に構成  
20 され、凝固用管 3 2 の下半部は上半部と同じ直径の筒状に構成され、凝固用管 3 2 の下端には底壁 3 4 が設けられている。

冷却用管 3 1 の下端の断面積に比べて、凝固用管 3 2 の断面積が不連続的に急に大きくなっているため、冷却用ガスの流速は凝固用管 3 2 に入ると、不連続的に急に減速することになるが、さらに、凝固用管 3 2 の下半部の内部には、冷却  
25 用ガスの流れを急減速させる為の減速機構 3 5 が設けられている。この減速機構 3 5 は、冷却用管 3 1 内の冷却用ガスのガス流に直交状に対向する対向部 3 6 a を含む部分球面状の減速部材 3 6 を有する。この減速部材 3 6 は、厚さ 0.1 ～ 0.2 mm のステンレス鋼板で構成され、弾性変形によるクッション作用を発揮する

。凝固用管 3 2 の上半部内で粒状の融液 2 5 が凝固した粒状（球状）の結晶体 2 5 a がソフトに衝突するようになっている。減速部材 3 6 の下面側には、減速部材 3 6 を支持し且つ冷却用ガスの通路を形成する筒体 3 7 が設けられている。

次に、ガス流形成機構 4 について説明する。

- 05   ガス流形成機構 4 は、落下管 3 の内部に上方から下方へ向う冷却用ガス（ヘリウムガス又はアルゴンガス）の流れを形成する為のものである。このガス流形成機構 4 は、落下管 3 に並列接続された複数（例えば、4 本）の外部通路 4 0 と、筒体 3 7 の内部に配設されたガス循環用ファン 4 1 とを備えている。

- 複数の外部通路 4 0 の上端は、環状のガス導入部 3 3 に連通接続され、複数の  
10 外部通路 4 0 の下端は、筒体 3 7 の内部のガス通路 3 8 に連通され、筒体 3 7 の上部には凝固用管 3 2 の下半部内の冷却用ガスをガス通路 3 8 に導入する複数の通路開口 4 2 が形成されている。ヘリウムガス又はアルゴンガス等の冷却用ガスは、必要に応じて開閉弁 4 2 を開いてポンペ 4 3 からガス供給管 4 4 により外部通路 4 0 の上端部に導入される。落下管 3 内を流れる冷却用ガスが、徐々に昇温  
15 するので、冷却用ガスを冷却する為の冷却装置 4 5 が設けられている。この冷却装置 4 5 は、外部通路 4 0 に外装された水冷チューブ 4 5 a と、この水冷チューブ 4 5 a に冷却水を供給する水供給系とで構成されている。

- また、落下管 3 の内部の冷却用ガスのガス圧を調節する圧力調節装置 4 6 （圧力調節手段）が設けられている。この圧力調節装置 4 6 は外部通路 4 0 に接続さ  
20 れた吸引管 4 7 と、開閉弁 4 8 と、真空ポンプ 4 9 及びその駆動モータ 4 9 a 等で構成されている。

次に、結晶体 2 5 a を回収する為の回収機構 5 について説明する。

- この回収機構 5 は、凝固用管 3 2 の底壁 3 4 の回収穴を開閉する開閉シャッター 5 0、この開閉シャッター 5 0 を駆動するソレノイドアクチュエータ 5 1、回  
25 収穴の下方から外部へ延びる回収ダクト 5 2、この回収ダクト 5 2 を開閉可能なシャッター弁 5 3、回収ダクト 5 2 から排出される結晶体 2 5 a を回収する回収箱 5 4 などを有する。

次に、センサ類と制御系について説明する。

まず、センサ類として、落下開始室 2 6 から落下開始直後の粒状の融液 2 5 の温度を測定する赤外線温度センサ 6 0 と、冷却用管 3 1 の途中部を落下中の粒状の融液 2 5 の温度を測定する赤外線温度センサ 6 1 と、冷却用管 3 1 の下端部を落下中の粒状融液 2 5 の温度を測定する赤外線温度センサ 6 2 と、導入通路 3 3 内の冷却用ガスの温度を測定するサーミスタ等の温度センサ 6 3 と、凝固用管 3 2 内の冷却用ガスのガス圧を検出する圧力センサ 6 4 などが設けられ、これらセンサ類と前記融液形成装置 2 の赤外線温度センサ 2 1 の検出信号は制御装置 7 0 へ出力される。

前記融液形成装置 2 の、第 1、第 2 高周波加熱コイル 1 5、1 6、加振機 1 8  
10 b、上下振動子 1 9 の振動発生部 2 0 は、制御装置 7 0 により駆動制御される。

また、ガス循環用ファン 4 1 を駆動する駆動モータ 4 1 a、真空ポンプ 4 9 の為の駆動モータ 4 9 a、ソレノイドアクチュエータ 5 1、シャッター弁 5 3 も制御装置 7 0 により駆動制御される。

次に、上記の落下管型粒状結晶製造装置 1 の作用と効果について説明する。

15 使用開始前に、融液形成装置 2 のチャンバー 2 2 内に不活性ガスを供給しながら、落下管 3 や外部通路 4 0 内の空気を真空ポンプ 4 9 で吸引してから、ポンベ 4 3 とガス供給管 4 4 から冷却用ガスを供給することにより、内部の空気をヘリウムガスやアルゴンガス等の冷却用ガスで置換し、落下管 3 内の冷却用ガスのガス圧を大気圧以下の所定圧力または大気圧程度の所定圧力にする。

20 その後、冷却水通路 1 3 に冷却水を循環させ、シリコンの原料 1 7 をルツボ 1 0 内へ供給し、ガス循環用ファン 4 1 を作動させた状態で、第 1、第 2 高周波加熱コイル 1 5、1 6 に高周波電流を供給して加熱を開始し、原料 1 7 が熔融状態になってから、上下振動子 1 9 を所定周期で振動させてノズル 1 0 a から粒状の融液 2 5 を順々に滴下させる。

25 落下管 3 のうちの冷却用管 3 1 は、その内部を流れる冷却用ガスの流速が粒状融液 2 5 の自由落下速度となるように、断面積が下方に向かって漸減するように構成されているため、粒状の融液 2 5 が冷却用管 3 1 内を自由落下するとき、冷却用ガスも粒状の融液 2 5 とほぼ同速度で下方へ流れるため、自由落下する粒状

の融液 2 5 と冷却用ガスとの間に相対速度は殆ど発生せず、粒状の融液 2 5 は冷却用ガスで効果的に冷却されるものの、粒状の融液 2 5 には冷却用ガスから外力が殆ど作用しない。粒状の融液 2 5 が冷却用管 3 1 内を自由落下するとき、重力や外力の影響を受けず、自由落下による微小重力状態を維持したまま落下するため、表面張力でほぼ真球の形状のまま落下する。そして、粒状の融液 2 5 が冷却用管 3 1 の下端に達するまでに粒状の融液 2 5 は過冷却状態まで冷却される。

ここで、冷却用管 3 1 の下端部の断面積に比べて、凝固用管 3 2 の断面積は不連続的に急に大きくなっているため、冷却用ガスの流速は凝固用管 3 2 に入ると不連続的に急に減速するうえ、冷却用管 3 1 内の冷却用ガスのガス流に直交状に  
10 対向する対向部 3 6 a を有する減速部材 3 6 によっても急減速される。そのため、凝固用管 3 2 内の冷却用ガスのガス圧は、冷却用管 3 1 の下端部の冷却用ガスのガス圧に比べて急に不連続的に増大する。それ故、凝固用管 3 2 内へ落下した粒状の融液 2 5 には軽い衝撃力が作用する。すると、粒状の融液 2 5 の最初に衝突する衝突点に結晶核が発生し、この結晶核を起点として結晶化が瞬時に波及し  
15 、対向部 3 6 a に達するまでに過冷却状態の粒状の融液 2 5 が単結晶からなる球状の結晶体 2 5 a となる。

尚、幾分大型の粒状の融液 2 5 などが、十分に結晶化しない状態で、減速部材 3 6 の対向部 3 6 a に衝突した場合には、その衝突の衝撃により結晶の成長が進行し、瞬時に単結晶の球状の結晶体 2 5 a となる。

20 ここで、赤外線温度センサ 6 0 ~ 6 2 の検出信号に基づいて、粒状の融液 2 5 の温度を夫々検出し、冷却用ガスの温度を低める必要がある場合には、冷却装置 4 5 の冷却能力を高める。

また、赤外線温度センサ 6 0 , 6 2 の検出信号に基づいて、粒状の融液 2 5 の落下速度を算出することができるから、粒状の融液 2 5 の落下速度が自由落下速度よりも高い場合には、ガス循環用ファン 4 1 の回転数を下げるように駆動モータ 4 1 a を制御するものとする。

このように、冷却用ガスにより粒状の融液 2 5 を冷却し、自由落下状態を維持しながら過冷却してほぼ球状の結晶体 2 5 a を製造することができる。また、過

冷却状態にした粒状の融液 2 5 に冷却用ガスにより衝撃を付与して結晶核を生成させ、結晶の成長を促進して結晶体 2 5 a を製造することができる。しかも、冷却用ガスによる冷却を効果的に行うため、冷却時間を短縮でき、落下管 3 の高さを大幅に短縮することができ、設備費を節減することができる。

- 05    しかも、冷却用ガスを循環させるので冷却用ガスの消費量が少なくなるうえ、冷却用ガスの圧力又は充填量および温度を制御可能であるので、冷却用ガスのガス圧を安定化させることができる。

次に、前記の実施例を部分的に変更する変更例について説明する。

- 1) 前記融液形成装置 1 は、一例を示すものに過ぎず、抵抗加熱、赤外線集光  
10 加熱、プラズマ或いはレーザー光により無機材料を融解させてその粒状の融液を発生させる装置、その他の加熱機構を備えた融液形成装置を適用可能である。

2) 粒状の融液の径が大きくなるほど冷却時間が長くなるため、落下管 3 のうちの冷却用管 3 1 の高さは、製造する結晶体のサイズに応じて変更可能に構成することが望ましい。

- 15    3) 前記落下管 3 の形状は、図 2 に示すような形状にしてもよい。

図 2 に示すように、融液 2 5 が落下管 3 内を落下する距離を  $y$  とし、落下距離  $y$  の位置における落下管 3 の半径を  $R$  とし、 $y$  軸と  $R$  軸を図示のように設定する。例えば、落下管 3 の上端の位置を  $y = 0$  の位置とする。

- 20    重力加速度を  $g$ 、落下開始後の経過時間を  $t$ 、融液 2 5 の落下速度を  $V_s$ 、 $y$  の位置において落下管 3 内を下方へ流れる冷却用ガスの流速を  $V$  とする。

$$y = (1/2) g \times t^2 \quad (1)$$

$$V_s = g \times t \quad (2)$$

$$(1)、(2) \text{ 式より、} V_s = (2 g y)^{1/2} \quad (3)$$

冷却用ガスの流量を  $C_0$  (一定値) とすると、

$$25 \quad (\pi/4) R^2 \times V = C_0 \quad (4)$$

$$\text{それ故、} V = C_1 / R^2 \quad (\text{但し、} C_1 \text{ は一定の定数}) \quad (5)$$

(3)、(5) 式より、 $K$  を一定の定数として、

$$R^2 \times y^{1/2} = K^2 \quad (6)$$

上記の（６）式で示される落下管３の断面形状は、例えば図２のようになる。

４）前記落下管３のうちの冷却用管３１の下端付近または凝固用管３２の上端付近において、粒状の融液２５に種々の刺激を付与する手段を設けることもある。その刺激としては、超音波、レーザー光、電界、磁界などの何れかを採用可能である。

５）前記の半導体シリコンの結晶体に代えて、シリコン以外の種々の半導体や種々の無機材料の結晶体を製造することができる。種々の無機材料としては、誘電体、磁性体、絶縁体、蛍光体、ガラス、宝石などを挙げるができる。

## 請求の範囲

1. 無機材料の粒状の融液を落下管内を自由落下させながら凝固させてほぼ球状の結晶体を作る落下管型粒状結晶体製造装置において、
- 05 前記落下管の内部に上方から下方へ向う冷却用ガスの流れを形成するガス流形成手段を設け、
- 前記落下管は、冷却用ガスの流速が前記粒状の融液の自由落下速度とほぼ等しくなるように下方ほど断面積が小さくなる冷却用管と、この冷却用管の下端に接続され且つこの冷却用管の下端から不連続的に断面積が拡大した凝固用管とを有
- 10 することを特徴とする落下管型粒状結晶体製造装置。
2. 前記ガス流形成手段は、落下管に並列接続された外部通路と、ガス循環用ファンとを備えていることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の落下管型球状結晶体製造装置。
3. 前記落下管の上端部に、前記外部通路に接続される環状のガス導入部を設
- 15 けたことを特徴とする請求の範囲第2項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。
4. 前記凝固用管の内部に、冷却用ガスの流れを急減速させる為の減速機構を設けたことを特徴とする請求の範囲第1項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。
5. 前記減速機構は、冷却用管内の冷却用ガスのガス流に直交状に対向する対
- 20 向部を含む部分球面状の減速部材を有することを特徴とする請求の範囲第4項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。
6. 前記粒状の融液は、冷却用管内を落下中に過冷却状態となり、凝固用管の内部で急減速される際の衝撃により急速に凝固することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。
- 25 7. 前記ガス流形成手段に、冷却用ガスを冷却する冷却装置を設けたことを特徴とする請求の範囲第2項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。
8. 前記無機材料が半導体であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。

9. 前記半導体がシリコンであることを特徴とする請求の範囲第8項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。

10. 前記冷却用ガスは、ヘリウムガスまたはアルゴンガスであることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。

05 11. 前記ガス流形成手段は、前記落下管の内部の冷却用ガスのガス圧と温度を調節する圧力温度調節手段を有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。

12. 前記落下管の上端に接続された融液形成装置であって、粒状の融液を作って落下管内へ滴下する融液形成装置を設けたことを特徴とする請求の範囲第10項に記載の落下管型粒状結晶体製造装置。



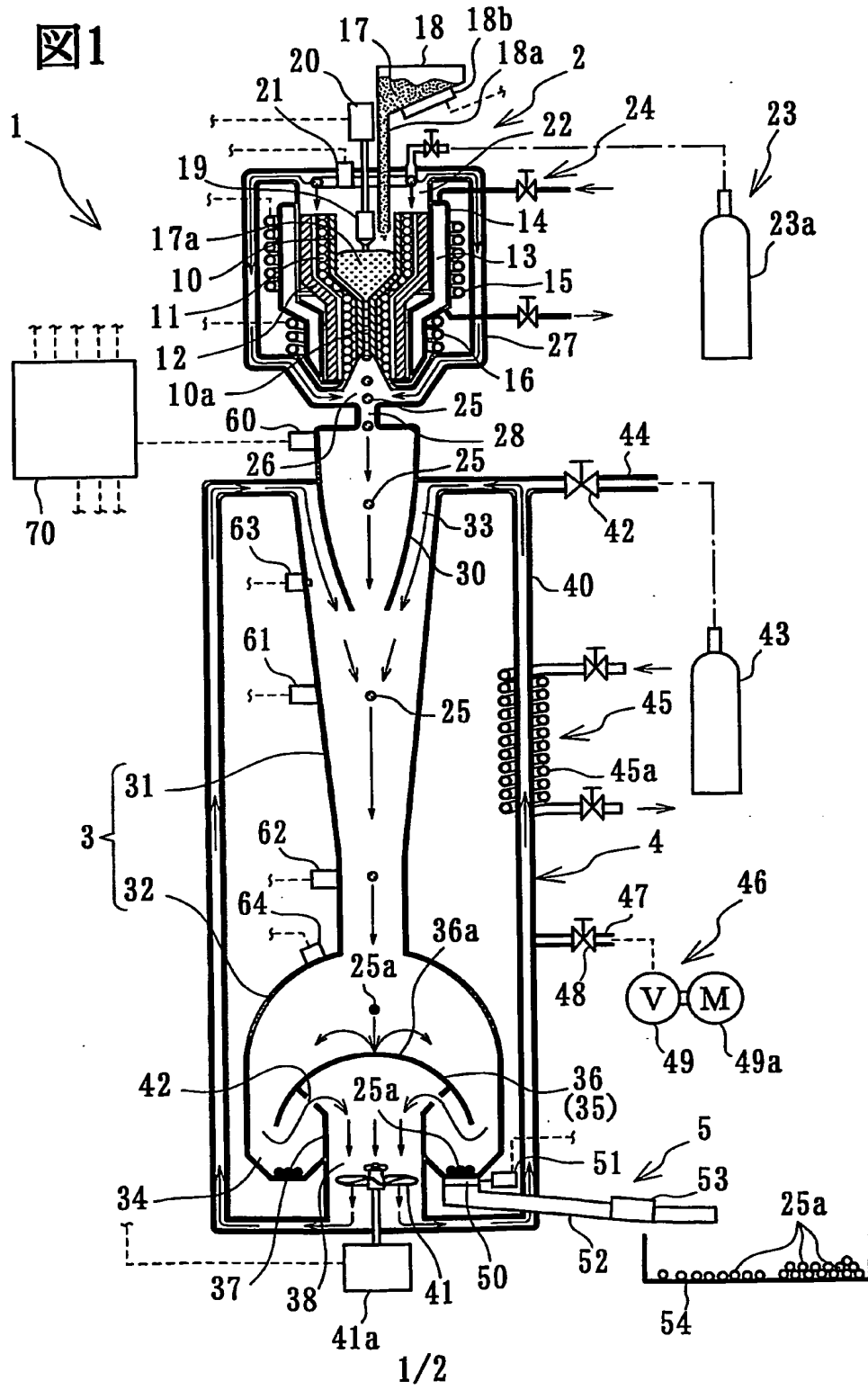
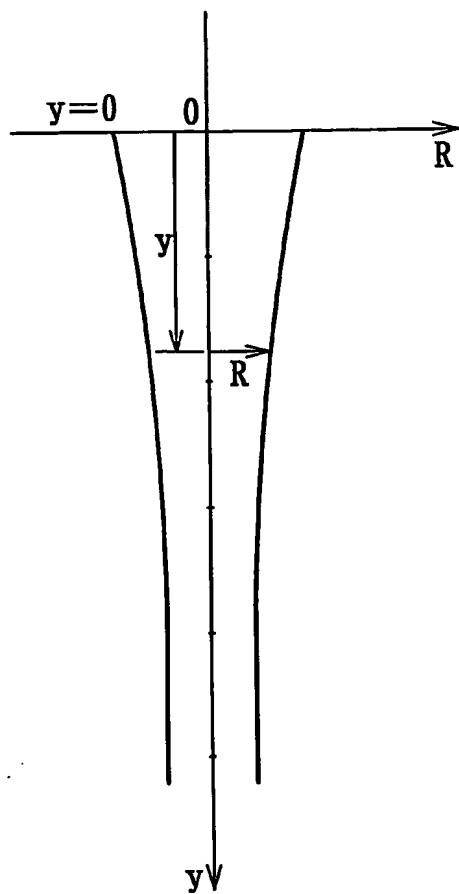


図2



**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 Int.Cl<sup>7</sup> C30B30/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

 Int.Cl<sup>7</sup> C30B1/00-35/00, B01J2/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE, WPI, JICST FILE

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 10-33969 A (Yorisuke NAKADA), 10 February, 1998 (10.02.98), Claims 1 to 8; Par. Nos. [0026] to [0028], [0033], [0044] to [0045]; Figs. 1 to 2, 4 (Family: none)	1, 8-12 2-7
A	US 4021323 A (Texas Instruments Inc.), 03 May, 1977 (03.05.77)	1-12
A	Takashi TSURUE et al., Production of Spherical Germanium by Drop Tubes. The Japan Society of Microgravity Application, Vol.15, Supplement, 1998, Pages 53 to 54	1-12

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

 "A" document defining the general state of the art which is not  
considered to be of particular relevance

 "E" earlier document but published on or after the international filing  
date

 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is  
cited to establish the publication date of another citation or other  
special reason (as specified)

 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other  
means

 "P" document published prior to the international filing date but later  
than the priority date claimed

"T"

 later document published after the international filing date or  
priority date and not in conflict with the application but cited to  
understand the principle or theory underlying the invention  
document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
considered novel or cannot be considered to involve an inventive  
step when the document is taken alone

"X"

"Y"

 document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
considered to involve an inventive step when the document is  
combined with one or more other such documents, such  
combination being obvious to a person skilled in the art  
document member of the same patent family

"&amp;"

 Date of the actual completion of the international search  
18 June, 2002 (18.06.02)

 Date of mailing of the international search report  
02 July, 2002 (02.07.02)

 Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

Best Available Cop

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C30B30/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C30B1/00-35/00, B01J2/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2002年

日本国登録実用新案公報 1994-2002年

日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE, WPI, JICST科学技術文献ファイル

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP 10-33969 A (中田仗祐) 1998. 02. 10 請求項1-8, 【0026】 - 【0028】, 【0033】, 【0044】 - 【0045】, 図1-2, 4 (ファミリーなし)	1, 8-12 2-7
A	US 4021323 A (TEXAS INSTRUMENTS INCORPORATED) 1977. 05. 03	1-12
A	Takashi TSURUE et al. Production of Spherical Germanium by Drop Tubes. The Japan Society of Microgravity Application, Vol. 15, Supplement, 1998, pp. 53-54	1-12

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 06. 02

国際調査報告の発送日

02.07.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

平塚 政宏



4G

2927

電話番号 03-3581-1101 内線 3416